

DIALOG(R) File 351:Derwent WPI
(c) 2003 Thomson Derwent. All rts. reserv.

009646427 **Image available**

WPI Acc No: 1993-339976/ 199343

Related WPI Acc No: 2003-008477

XRAM Acc No: C93-150907

XRPA Acc No: N93-262438

Organic electroluminescence element for planar light source or flat display panel - uses subst. poly-(para-phenylene-vinylene) as luminescent material

Patent Assignee: SUMITOMO CHEM CO LTD (SUMO)

Number of Countries: 001 Number of Patents: 002

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Week
JP 5247460	A	19930924	JP 92300903	A	19921111	199343 B
JP 3328731	B2	20020930	JP 92300903	A	19921111	200271

Priority Applications (No Type Date): JP 922124 A 19920109; JP 91321976 A 19911205

Patent Details:

Patent No	Kind	Lan	Pg	Main IPC	Filing Notes
-----------	------	-----	----	----------	--------------

JP 5247460	A	7	C09K-011/06
------------	---	---	-------------

JP 3328731	B2	7	H05B-033/14	Previous Publ. patent JP 5247460
------------	----	---	-------------	----------------------------------

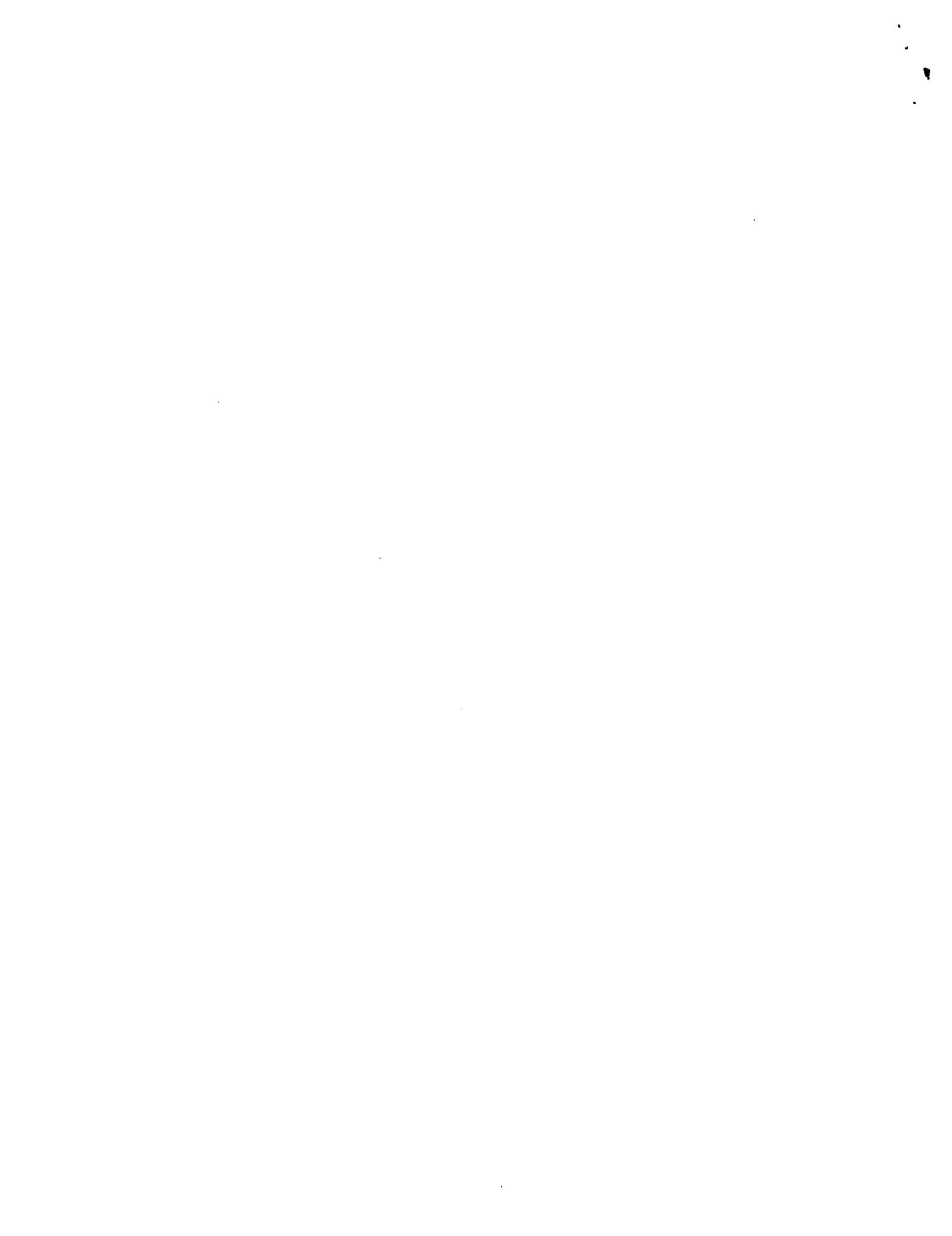
Abstract (Basic): JP 5247460 A

Element has at least the luminescent layer between a pair of electrodes of which at least one is transparent or translucent, consisting of an anode and a cathode. Element comprises subst. poly(p-phenylene vinylene) of formula (I) and an electron-transporting cpd. in the luminescent layer. In (I), R1-4 = H, or one or 1-20C alkyl, alkoxy and alkylthio, and also 6-20C aromatic hydrocarbon; at least one of R1-4 is 4-20C alkyl, alkoxy or alkylthio; n = integer of over 5.

Pref. a layer of an electron-transporting cpd. is laid adjoining the luminescent layer, between the cathode and the luminescent layer. The cathode is formed of alloy consisting of Mg and Ag.

USE/ADVANTAGE - The organic electroluminescence element is used for the planar light source, the flat panel display, etc. and it can be driven at low voltage and it has improved luminance.

In an example, luminescent layer (thickness: 800 angstroms) consisting of poly(2,5-diheptyl p-phenylene vinylene) (number-average degree of polymerisation of about 360) synthesised by using 2,5-diheptyl-p-xylylene dibromide and 2-(4-biphenyl)-5-(4-t-butylphenyl)-1,2,3-oxadiazole (electron transporting cpd.) formed from its 0.67 wt.% soln. in toluene/chloroform = 3/2 (wt. ratio) (in the 5 wt.% mixing ratio to poly(2,5-diheptyl-p-phenylene vinylene) was formed on a glass substrate having 200 angstrom thick ITO film deposited by sputtering, by spin coating. After drying the layer at 60 deg. C for 1 hr. under reduced pressure, the organic EL(electroluminescence) element was prep'd. by depositing indium (3000 angstrom) on the layer by vacuum evapn. coating (degree of vacuum or under 3×10^{-6} Torr) as cathode. When applying 19.4 V voltage to the element, a current of 275 mA/cm² current density flowed and orange EL luminescence of 160.6 cd/m² luminance was observed. To obtain 20 cd/m² luminance, the voltage was 13.2 V.



(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平5-247460

(43) 公開日 平成5年(1993)9月24日

(51) Int.Cl.⁵

C 0 9 K 11/06

C 0 8 G 61/00

D 10 5 B 33/14

識別記号 庁内整理番号

Z 6917-4H

N L F 8215-4J

F I

技術表示箇所

(21) 出願番号 特願平4-300903

(22) 出願日 平成4年(1992)11月11日

(31) 優先権主張番号 特願平3-321976

(32) 優先日 平3(1991)12月5日

(33) 優先権主張国 日本 (JP)

(31) 優先権主張番号 特願平4-2124

(32) 優先日 平4(1992)1月9日

(33) 優先権主張国 日本 (JP)

(71) 出願人 000002093

住友化学工業株式会社

大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

(72) 発明者 大西 敏博

茨城県つくば市北原6 住友化学工業株式会社内

(72) 発明者 野口 公信

茨城県つくば市北原6 住友化学工業株式会社内

(72) 発明者 土居 秀二

茨城県つくば市北原6 住友化学工業株式会社内

(74) 代理人 介理士 久保山 隆 (外1名)

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

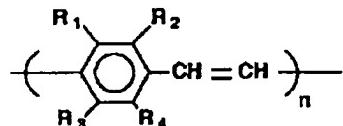
(57) 【要約】

【目的】 低電圧駆動で、しかも輝度が向上した有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

【構成】 少なくとも一方が透明または半透明である一对の陽極および陰極からなる電極間に、少なくとも発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、該発光層が下記化1

を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化1】



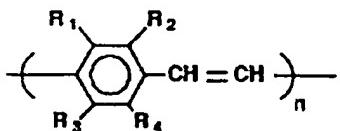
(式中、R₁、R₂、R₃、R₄はそれぞれ独立に水素、炭素数1～20のアルキル基、アルコキシ基およびアルキルチオ基ならびに炭素数6～20の芳香族炭化水素基から選ばれた基を示し、且つ少なくとも一つが炭素数4～20のアルキル基、アルコキシ基またはアルキルチオ基であり、nは5以上の数を表す。) で表される置換ポリ(p-フェニレンビニレン)と電子輸送性化合物

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】少なくとも一方が透明または半透明である一対の陽極および陰極からなる電極間に、少なくとも発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、該発光層が下記化1

【化1】



(式中、R₁、R₂、R₃、R₄はそれぞれ独立に水素、炭素数1～20のアルキル基、アルコキシ基およびアルキルチオ基ならびに炭素数6～20の芳香族炭化水素基から選ばれた基を示し、且つ少なくとも一つが炭素数4～20のアルキル基、アルコキシ基またはアルキルチオ基であり、nは5以上の数を表す。)で表される置換ポリ(p-フェニレンビニレン)と電子輸送性化合物を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項2】少なくとも一方が透明または半透明である一対の陽極および陰極からなる電極間に少なくとも発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、該発光層が化1で表される置換ポリ(p-フェニレンビニレン)よりなり、且つ陰極と該発光層との間に、該発光層に隣接して電子輸送性化合物からなる層を設けたことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】陰極がMgとAgの合金からなることを特徴とする請求項1または2記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は有機エレクトロルミネッセンス素子(以下有機EL素子)に関するものである。詳しくは、置換ポリ(p-フェニレンビニレン)を発光材料として用いた有機EL素子に関する。

【0002】

【従来の技術】従来から用いられている無機エレクトロルミネッセンス素子は発光させるのに高電圧が必要であった。最近、Tangらは有機蛍光色素を発光層とし、それに電子写真の感光体等に用いられていた有機電荷輸送化合物を積層した二層構造を有する有機EL素子を作製し、発光層のみを有するものに比較して低電圧駆動、高効率、高輝度の有機EL素子を実現させた(特開昭59-194393号公報)。有機EL素子は無機EL素子に比べ、低電圧駆動、高輝度に加えて多数の色の発光が容易に得られるという特長があることから、素子構造や有機蛍光色素、有機電荷輸送化合物について多くの試みが報告されている(ジャバニーズ・ジャーナル・オブ

10

・アプライド・フィジックス(Jpn. J. Appl. Phys.)27巻、1269(1988年)、[ジャーナル・オブ・アプライド・フィジックス(J. Appl. Phys.)65巻、3610頁(1989年)]。これまでに、発光材料としては低分子量の有機蛍光色素が一般に用いられており、高分子量の発光材料としては、WO9013148号公開明細書、特開平3-126787号公報、アプライド・フィジックス・レターズ(Appl. Phys. Lett.)58巻、1982頁(1991年)などで提案されているにすぎなかった。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、これまで報告してきた高分子発光材料を用いた有機EL素子は駆動電圧が高く、輝度も必ずしも十分とは言い難いものであった。高分子発光材料は熱的に安定であり、また塗布法により容易に均一性に優れた発光層を形成できることから、それらの長所を生かしながら、より駆動電圧が低く、高輝度である有機EL素子が要望されている。

20

【0004】本発明の目的は高分子発光材料を発光層とした低電圧駆動、高輝度の有機EL素子を提供することにある。

【0005】

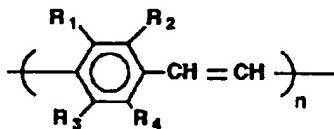
【課題を解決するための手段】本発明者等は、高分子発光材料を発光層として用いた有機EL素子の低電圧駆動、高輝度化を銳意検討してきた。その結果、高分子発光材料として、置換ポリ-p-フェニレンビニレンを用い、これに、電子輸送性化合物を添加したものを発光層として用いるか、または、高分子発光層と陰極との間に高分子発光層に隣接して電子輸送性化合物の層を形成することにより、高分子発光材料を単独で用いた場合に比べて、低電圧駆動化、高輝度化が実現されることを見出しつつ、本発明に至った。

【0006】すなわち、本発明は、少なくとも一方が透明または半透明である一対の陽極および陰極からなる電極間に、少なくとも発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、該発光層が下記化2

【0007】

【化2】

40



(式中、R₁、R₂、R₃、R₄はそれぞれ独立に水素、炭素数1～20のアルキル基、アルコキシ基およびアルキルチオ基ならびに炭素数6～20の芳香族炭化水素基から選ばれた基を示し、且つ少なくとも一つが炭素数4～20のアルキル基、アルコキシ基またはアルキルチオ基であり、nは5以上の数を表す。)で表される置

換ポリ(p-フェニレンビニレン)と電子輸送性化合物を含むこと、あるいは該発光層が上記化2で表される置換ポリ(p-フェニレンビニレン)よりなり、且つ該発光層と陰極の間に該発光層に隣接して電子輸送性化合物の層を設けることを特徴とする有機EL素子を提供することにある。

【0008】以下、本発明の有機EL素子について詳細に説明する。本発明に用いられる上記化2で表わされる置換ポリ(p-フェニレンビニレン)は溶剤に可溶性のものである。ここで、R₁、R₂、R₃、R₄はそれぞれ独立に水素、炭素数1～20のアルキル基、アルコキシ基およびアルキルチオ基ならびに炭素数6～20の芳香族炭化水素基から選ばれた基を示し、且つ可溶性を与えるには、少なくともそれらの一つが炭素数4～20のアルキル基、アルコキシ基またはアルキルチオ基であることが必要である。これらのなかで成膜性が良好なアルキル基、アルコキシ基が特に好ましい。ここで、炭素数1～20のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、ブチル基、ベンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、デシル基、ラウリル基、2-エチル-ヘキシル基、3-メチル-ブチル基、イソプロピル基などであり、ベンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、デシル基、ラウリル基、2-エチル-ヘキシル基、3-メチル-ブチル基、イソブリューピルオキシ基などであり、ベンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ヘプチルオキシ基、オクチルオキシ基、デシルオキシ基、ラウリルオキシ基、2-エチル-ヘキシルオキシ基、3-メチル-ブチル基、イソブリューピルオキシ基などであり、ベンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ヘプチルオキシ基、オクチルオキシ基、デシルオキシ基、2-エチル-ヘキシルオキシ基、3-メチル-ブチル基が好ましい。アルキルチオ基としては、メチルチオ基、エチルチオ基、ブチルチオ基、ベンチルチオ基、ヘキシルチオ基、ヘプチルチオ基、オクチルチオ基、デシルチオ基、ラウリルチオ基、2-エチル-ヘキシルチオ基、3-メチル-ブチルチオ基、イソブリューピルチオ基などであり、ベンチルチオ基、ヘキシルチオ基、ヘプチルチオ基、オクチルチオ基、デシルチオ基、2-エチル-ヘキシルチオ基、3-メチル-ブチルチオ基が好ましい。芳香族炭化水素基としてはフェニル基、4-アルコキシフェニル基、4-アルキルフェニル基、1-ナフタレン基、2-ナフタレン基が例示される。

【0009】具体的な置換ポリ(p-フェニレンビニレン)としては、ポリ(2,5-ジベンチル-p-フェニレンビニレン)、ポリ(2,5-ジヘキシル-p-フェニレンビニレン)、ポリ(2,5-ジヘプチルオキシ-p-フェニレンビニレン)、ポリ(2,5-ジオクチルオキシ-p-フェニレンビニレン)、ポリ(2,5-ジデシルオキシ-p-フェニレンビニレン)、ポリ(2,5-ジベンチルチオ-p-フェニレンビニレン)、ポリ(2,5-ジヘキシルチオ-p-フェニレンビニレン)、ポリ(2,5-ジヘプチルチオ-p-フェニレンビニレン)、ポリ(2-メトキシ-5-ヘプチルオキシ-p-フェニレンビニレン)、ポリ(2-メトキシ-5-(2'-エチル-ヘキシルオキシ)-p-フェニレンビニレン)、ポリ(2-メトキシ-5-ヘプチルチオ-p-フェニレンビニレン)、ポリ(2-メトキシ-5-ラウリルチオ-p-フェニレンビニレン)、ポリ(2-メトキシ-5-(3'-メチル-ブチル基)-p-フェニレンビニレン)などが例示される。これらの中で、ポリ(2,5-ジベンチル-p-フェニレンビニレン)、ポリ(2,5-ジヘキシル-p-フェニレンビニレン)、ポリ(2,5-ジヘプチル-p-フェニレンビニレン)、ポリ(2,5-ジオクチルオキシ-p-フェニレンビニレン)、ポリ(2,5-ジデシルオキシ-p-フェニレンビニレン)、ポリ(2-メトキシ-5-ヘキシルオキシ-p-フェニレンビニレン)、ポリ(2-メトキシ-5-(3'-メチル-ブチル基)-p-フェニレンビニレン)が好ましい。これらの置換ポリ(p-フェニレンビニレン)は単独で用いてもよいし、2種類以上を混合して用いてもよい。

【0010】化2において、nは繰り返し単位の数を表し、5以上であれば特に限定されないが、余りにも小さすぎると均一な膜が得られにくい場合があり、また、余りに大きすぎても溶解性が低下し、均一に製膜することが困難になる場合があるのでnの範囲は10～30000が好ましく、10～10000がより好ましい。

【0011】これらの有機溶媒可溶性の置換ポリ(p-フェニレンビニレン)を用いることにより、溶液から成膜する場合、この溶液を塗布後乾燥により溶媒を除去するだけでもよし、また、電子輸送性化合物を混合した場合においても同様な手法が適用でき、製造上非常に有利である。

【0012】上記化2で示される置換ポリ(p-フェニレンビニレン)の合成法としては特に限定されないが、例えば特開平1-254734号公報、特開平1-79217号公報等に記載されている方法が用いられる。すなわち、例えば、相当するビス(ハロゲン化メチル)化

4

50

合物、より具体的には、例えば、2, 5-ジヘプチルオキシ-p-キシリレンジプロミドを、キシリレン/第三級ブチルアルコール混合溶媒中、第三級ブトキシカリウムを用いて重合させる脱ハロゲン化水素法をあげることができる。また、相当するホスホニウム塩とアルデヒドとをリチウムアルコラートを触媒として反応させる方法であるWittig法、相当するスルホニウム塩をアルカリ存在下に重合させ、ついで脱スルホニウム塩処理を行なうスルホニウム塩分解法などが例示される。また、これらの高分子化合物を有機EL素子の発光層として用いる場合、その純度が発光特性に影響を与えるため、合成後、再沈精製、クロマトグラフによる分別等の純化処理をすることが望ましい。

【0013】本発明に用いられる電子輸送性化合物としては、発光材料として使用する置換ポリ(p-フェニレンビニレン)に対して電子輸送性が高ければ特に限定されないが、例えば、オキサジアゾール系化合物、ベンゾキノン系化合物、ナフトキノン系化合物、アントラキノン系化合物、テトラシアノアヌラキノジメタン系化合物、ジフェニルジシアノエチレン系化合物、フルオレン系化合物、ジフェノキノン系化合物、8-ヒドロキシキノリンおよびその誘導体の金属錯体等が例示される。具体的には、特開昭63-70257、同63-175860号公報、特開平2-135361、同2-135359、143-152184号公報に記載されているもの等、公知のものが使用可能であるが、オキサジアゾール系化合物、ベンゾキノン系化合物、アントラキノン系化合物、8-ヒドロキシキノリンおよびその誘導体の金属錯体が好ましく、特に、2-(4-ビフェニリル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール、ベンゾキノン、アントラキノン、トリス(8-キノリノール)アルミニウムが好ましい。これらの電子輸送性化合物は、単独で用いてもよいし、2種類以上を混合して用いてもよい。電子輸送性化合物を置換ポリ(p-フェニレンビニレン)に混合して使用する場合、その量は少なすぎると効果が小さく、多すぎると発光に寄与しない電流が増加するため、有機EL素子にした場合、輝度等の特性が悪くなる。使用する電子輸送性化合物の分子量によっても異なるが、混合する割合は長鎖基置換ポリ(p-フェニレンビニレン)に対して1~40wt%が好ましく、より好ましくは2~30wt%である。

【0014】本発明においては、化2で示される置換ポリ(p-フェニレンビニレン)に、既知の発光材料を分散させたものを発光層として用いることも含まれる。発光材料としては特に限定されないが、例えば、ナフタレン誘導体、アントラセン及びその誘導体、ペリレン及びその誘導体、ポリメチレン系、キサンテン系、クマリン系、シアニン系などの色素類、8-ヒドロキシキノリンおよびその誘導体の金属錯体、芳香族アミン、テトラフ

エニルシクロペンタジエン及びその誘導体、テトラフェニルブタジエン及びその誘導体などを用いることができる。具体的には、例えば特開昭57-51781、同59-194393号公報に記載されているもの等、公知のものが使用可能である。

【0015】本発明の有機EL素子の構造について以下に述べる。陽極および陰極からなる一対の電極で、透明または半透明な電極としては、ガラス、透明プラスチック等の透明基板の上に透明または半透明の電極を形成したもののが用いられる。陽極の材料としては、導電性の金属酸化物膜、半透明の金属薄膜等が用いられる。具体的にはインジウム・スズ・オキサイド(ITO)、酸化スズ(NESA)、Au、Pt、Ag、Cu等が用いられる。作製方法としては真空蒸着法、スパッタリング法、メッキ法などが用いられる。

【0016】次いで、この陽極上に置換ポリ(p-フェニレンビニレン)と電子輸送性化合物を含む発光層を形成する。成膜方法としてはこれら材料の混合液を使用してスピンドーティング法、キャスティング法、ディッピング法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法または真空蒸着法が例示されるが、混合溶液をスピンドーティング法、キャスティング法、ディッピング法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法により成膜するのが特に好ましい。

【0017】発光層の膜厚としては5Å~10μm、好ましくは10Å~1μmである。電流密度を上げて発光効率を上げるためにには100~5000Aの範囲が好ましい。なお、塗布法により薄膜化した場合には、溶媒を除去するため、減圧あるいは不活性雰囲気下、室温以上で材料の分解温度以下、具体的には30~330℃、好ましくは60~300℃、さらに好ましくは100~250℃の温度で熱処理することが望ましい。熱処理する時間としては、溶媒を除去するためには少なくとも10分以上処理することが好ましく、実用的には1~24時間がより好ましい。

【0018】また、別の態様である発光層が電子輸送性化合物を含まない場合には上記の成膜方法で発光層を設け、その上に電子輸送層を形成する。電子輸送層の材料としては前述の電子輸送性化合物が用いられる。

【0019】電子輸送性化合物の成膜方法としては、特に限定されないが、粉末状態からの真空蒸着法、あるいは溶媒に溶かした後のスピンドーティング法、キャスティング法、ディッピング法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法、あるいは上記化2の長鎖基置換ポリ(p-フェニレンビニレン)またはそれとは別の高分子化合物と電子輸送性化合物とを溶液状態または溶融状態で混合し分散させた後のスピンドーティング法、キャスティング法、ディッピング法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法を用いることができる。混合する高分子化合物としては、特に限定されないが、電荷輸送を担

度に阻害しないものが好ましく、また、可視光に対する吸収が強くないものが好適に用いられる。例えば、上記化2の長鎖基置換ポリ(p-フェニレンビニレン)、ポリ(p-フェニレンビニレン)、ポリ(2, 5-ジメトキシ-p-フェニレンビニレン)、ポリ(2, 5-ジメチル-p-フェニレンビニレン)、ポリチオフェン及びその誘導体、ポリ(2, 5-チエニレンビニレン)及びその誘導体、ポリカーボネート、ポリメタクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル、ポリシロキサンなどが例示される。製膜が容易に行なえるという点では、塗布法を用いることが好ましい。

【0020】電子輸送層の膜厚は、少なくともビンホールが発生しないような厚みが必要であるが、あまり厚いと素子の抵抗が増加し、高い駆動電圧が必要となり好ましくない。したがって、電子輸送層の膜厚は5 Å～10 μm、好ましくは10 Å～1 μm、さらに好ましくは50～2000 Åである。

【0021】次いで、発光層が置換ポリ(p-フェニレンビニレン)と電子輸送性化合物との混合層の場合はこの層の上に、また発光層と電子輸送層が積層されている場合は電子輸送層の上に電極を設ける。この電極は電子注入陰極となる。その材料としては、特に限定されないが、イオン化工ネルギーの小さい材料が好ましい。例えば、Al、In、Mg、MgとAgの合金(Mg-Ag合金と記載することがある)、In-Ag合金、Mg-In合金、グラファイト薄膜等が用いられる。これらの中ではMgとAgの合金が好ましい。陰極の作製方法としては真空蒸着法、スパッタリング法等公知の方法が用いられる。

【0022】なお、本発明のEL素子の構造としては、これまで述べた陽極/発光層/陰極(／は層を積層したことと示す)、あるいは陽極/発光層/電子輸送層/陰極の構造以外に、陽極と発光層の間、または陰極と電子輸送層との間に高分子化合物のバッファー層を有する組み合わせの構造、すなわち陽極/バッファー層/発光層/陰極、陽極/バッファー層/発光層/電子輸送層/陰極、陽極/発光層/バッファー層/陰極、陽極/発光層/電子輸送層/バッファー層/陰極、陽極/バッファー層/発光層/バッファー層/陰極、陽極/バッファー層/発光層/電子輸送層/バッファー層/陰極をとることもできる。バッファー層に用いる高分子化合物としては特に限定されないが、電荷輸送を極度に阻害しないものが好ましく、また、可視光に対する吸収が強くないものが好適に用いられる。例えば、ポリ(N-ビニルカルバゾール)、ポリアニリン及びその誘導体、ポリチオフェン及びその誘導体、ポリ(2, 5-チエニレンビニレン)及びその誘導体、ポリシラン及びその誘導体などが例示される。成膜が容易に行なえるという点では、塗布法を用いることが好ましい。バッファー層の厚みは通常

5 Å～10 μm、電流密度を上げて発光効率を上げるために好ましくは10～5000 Å、より好ましくは20～1000 Åである。

【0023】

【実施例】以下本発明の実施例を示すが、本発明はこれに限定されるものではない。

【0024】実施例1

スパッタリングによって、200 Åの厚みでITO膜を付けたガラス基板に、特開平1-79217号公報の実施例6で2, 5-ジヘプチル-p-キシリレンジプロミドの代わりに2, 5-ジヘプチルオキシ-p-キシリレンジプロミドを用いて実施例6記載の方法で合成したポリ(2, 5-ジヘプチルオキシ-p-フェニレンビニレン)(ゲルバーミエーションクロマトグラフ(GPC)によるポリスチレン換算の数平均重合度約360)と電子輸送性化合物として2-(4-ビフェニリル)-5-(4-t-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール(ポリ(2, 5-ジヘプチルオキシ-p-フェニレンビニレン)に対する混合割合は5wt%)の0.6

20 7wt%トルエン/クロロホルム(3/2重量比)溶液を用い、スピンドルにより800 Åの厚みで成膜した。次いで、これを減圧下60°Cで1時間乾燥した後、その上に陰極として、Inを3000 Å蒸着して、有機EL素子を作製した。蒸着のときの真空度は 3×10^{-6} Torr以下であった。この素子に電圧19.4Vを印加したところ、電流密度27.5 mA/cm²の電流が流れ、輝度160.6 cd/m²のオレンジ色のEL発光が観察された。また20 cd/m²の輝度にするための電圧は13.2Vであった。

【0025】実施例2

2-(4-ビフェニリル)-5-(4-t-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾールをポリ(2, 5-ジヘプチルオキシ-p-フェニレンビニレン)に対して15wt%とした以外は実施例1と同じ方法で890 Åの厚みの発光層を持つ、有機EL素子を作製した。この素子に電圧26.0Vを印加したところ、電流密度21.9 mA/cm²の電流が流れ、輝度71.9 cd/m²のオレンジ色のEL発光が観察された。また20 cd/m²の輝度にするための電圧は19.6Vであった。

【0026】実施例3

2-(4-ビフェニリル)-5-(4-t-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾールをポリ(2, 5-ジヘプチルオキシ-p-フェニレンビニレン)に対して2.5wt%とした以外は実施例1と同じ方法で1010 Åの厚みの発光層を持つ、有機EL素子を作製した。この素子に電圧19.4Vを印加したところ、電流密度5.6 mA/cm²の電流が流れ、輝度46.8 cd/m²のオレンジ色のEL発光が観察された。また20 cd/m²の輝度にするための電圧は17.5Vであった。

【0027】比較例1

ポリ(2, 5-ジヘプチルオキシ-p-フェニレンビニレン)に2-(4-ビフェニリル)-5-(4-t-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾールを混合しない以外は実施例1と同じ方法で980Åの厚みの発光層を持つ、有機EL素子を作製した。この素子に電圧33. 3Vを印加したところ、電流密度617mA/cm²の電流が流れたが、輝度26. 4cd/m²のオレンジ色のEL発光が観察されただけであった。また20cd/m²の輝度にするための電圧は32. 9Vであった。

【0028】実施例4

ポリ(2, 5-ジヘプチルオキシ-p-フェニレンビニレン)の代わりに、特開平1-79217号公報の実施例6で2, 5-ジヘプチル-p-キシリレンジプロミドの代わりに2, 5-ジヘキシルオキシ-p-キシリレンジプロミドを用いて実施例6記載の方法で合成したポリ(2, 5-ジヘキシルオキシ-p-フェニレンビニレン)(GPCによるポリスチレン換算数平均重合度約160)を用い、2-(4-ビフェニリル)-5-(4-t-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾールをポリ(2, 5-ジヘキシルオキシ-p-フェニレンビニレン)に対して10wt%混合し、溶媒としてクロロホルムを用いた以外は実施例1と同じ方法で1300Åの厚みの発光層を持つ、有機EL素子を作製した。この素子に電圧25. 0Vを印加したところ、電流密度346mA/cm²の電流が流れ、輝度44. 6cd/m²のオレンジ色のEL発光が観察された。また20cd/m²の輝度にするための電圧は23. 5Vであった。

【0029】実施例5

ポリ(2, 5-ジヘプチルオキシ-p-フェニレンビニレン)の代わりに、特開平1-79217号公報の実施例6で2, 5-ジヘプチル-p-キシリレンジプロミドの代わりに2, 5-ジベンチルオキシ-p-キシリレンジプロミドを用いて実施例6記載の方法で合成したポリ(2, 5-ジベンチルオキシ-p-フェニレンビニレン)(GPCによるポリスチレン換算数平均重合度約400)を用い、2-(4-ビフェニリル)-5-(4-t-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾールをポリ(2, 5-ジベンチルオキシ-p-フェニレンビニレン)に対して10wt%混合し、溶媒としてクロロホルムを用いた以外は実施例1と同じ方法で1400Åの厚みの発光層を持つ、有機EL素子を作製した。この素子に電圧23. 3Vを印加したところ、電流密度386mA/cm²の電流が流れ、輝度51. 4cd/m²のオレンジ色のEL発光が観察された。また20cd/m²の輝度にするための電圧は22. 5Vであった。

【0030】比較例2

2-(4-ビフェニリル)-5-(4-t-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾールをポリ(2, 5-

-ジヘプチルオキシ-p-フェニレンビニレン)に対して44. 4wt%混合した以外は実施例1と同じ方法で2600Åの厚みの発光層を持つ、有機EL素子を作製した。この素子に電圧40. 0Vを印加したところ、電流密度1360mA/cm²の電流が流れたが、輝度13. 4cd/m²のオレンジ色のEL発光が観察されただけであった。また電圧を上げると絶縁破壊のため20cd/m²の輝度にすることできなかった。

【0031】実施例6

スパッタリングによって、200Åの厚みでITO膜を付けたガラス基板に、実施例1と同様の方法で合成したポリ(2, 5-ジヘプチルオキシ-p-フェニレンビニレン)と電子輸送性化合物としてアントラキノン(ポリ(2, 5-ジヘプチルオキシ-p-フェニレンビニレンに対する混合割合は5wt%)の0. 67wt%トルエン/クロロホルム(3/2重量比)溶液を用い、スピンドットにより1100Åの厚みで成膜した。次いで、これを減圧下60°Cで1時間乾燥した後、その上に陰極として、Inを3000Å蒸着して、有機EL素子を作製した。蒸着のときの真空度は3×10⁻⁶Torr以下であった。この素子に電圧20. 8Vを印加したところ、電流密度165. 2mA/cm²の電流が流れ、輝度146cd/m²のオレンジ色のEL発光が観察された。また、20cd/m²の輝度にするための電圧は16. 8Vであった。

【0032】実施例7

ITO膜上にバッファー層としてポリ(2, 5-チエニレンビニレン)とポリ(p-フェニレンビニレン)の7:3(重量比)の混合物から成る層を付けた以外は、発光層、陰極は実施例6と同じ方法で、バッファー層と発光層の厚さの合計が1500Åの有機EL素子を作製した。ここで、ポリ(2, 5-チエニレンビニレン)とポリ(p-フェニレンビニレン)の7:3の混合物から成る層は、特開平1-9221号公報の実施例1に記載の方法で得たポリ(2, 5-チエニレンビニレン)(PTV)中間体をN, N-ジメチルホルムアミド(DMF)に溶解してPTV中間体溶液としたものと、特開昭59-199746号公報の実施例1に記載の方法で合成したポリ(p-フェニレンビニレン)(PPV)中間体のBr⁻塩の水溶液を大量のNaBF₄水溶液に添加して対イオン(Br⁻)をBF₄⁻に交換し、沈澱として回収したPPV中間体のBF₄⁻塩をDMFに溶解してPPV中間体溶液としたものを、熱処理後生成する両高分子の重量比が7:3となるような割合で混合した溶液をスピンドットにより成膜し、200°Cで熱処理することにより作成した。この素子に電圧24. 4Vを印加したところ、電流密度70. 8mA/cm²の電流が流れ、輝度120cd/m²のオレンジ色のEL発光が観察された。また、20cd/m²の輝度にするための電圧は18. 2Vであった。

11

【0033】実施例8

アントラキノンの代わりにベンゾキノンを混合した以外は実施例6と同じ方法で630Åの厚みの発光層を持つ、有機EL素子を作製した。この素子に電圧18.3Vを印加したところ、電流密度163.4mA/cm²の電流が流れ、輝度63cd/m²のオレンジ色のEL発光が観察された。また、20cd/m²の輝度にするための電圧は14.8Vであった。

【0034】実施例9

実施例1と同じ方法でITO膜を付けたガラス基板に、実施例1と同じ方法で合成したポリ(2,5-ジヘプチルオキシ-p-フェニレンビニレン)〔ゲルバーハエーションクロマトグラフ(GPC)によるポリスチレン換算の数平均重合度約360〕の0.75wt%クロロホルム溶液を用い、ディッピングにより成膜した。ついで、これを減圧下60°Cで1時間乾燥した後、その上に電子輸送層として、トリス(8-キノリノール)アルミニウムを700Å蒸着し、ついで陰極として、Mg-Ag合金(重量比10:1)を1500Å、さらにその上にAgを1000Å蒸着して、有機EL素子を作製した。有機層の厚さは合計910Åであった。また、蒸着

12

のときの真空度はいずれも3×10⁻⁶Torr以下であった。この素子に電圧17.8Vを印加したところ、電流密度420mA/cm²の電流が流れ、輝度2290cd/m²のオレンジ色のEL発光が観察された。発光スペクトルはポリ(2,5-ジヘプチルオキシ-p-フェニレンビニレン)の蛍光スペクトルと一致した。

【0035】比較例3

電子輸送層を設けない以外は、実施例9と同じ方法で有機EL素子を作製した。この素子に電圧9.2Vを印加したところ、電流密度569mA/cm²の電流が流れ、輝度1189cd/m²のオレンジ色のEL発光が観察された。また、これ以上電圧を上げても輝度は向上せず、11.7Vで素子の破壊のため発光しなくなった。

【0036】

【発明の効果】以上説明したように、本発明の有機EL素子は、従来のものと比較して、低電圧駆動で、しかも輝度が向上しており、バックライトとしての面状光源、フラットパネルディスプレイ等の装置としての使用が可能である。

